

Avis de Soutenance

Madame Lucia GIARRACCA

Energetique, thermique, combustion

Soutiendra publiquement ses travaux de thèse intitulés

Impact de l'oxydation des biocarburants lignocellulosiques sur la formation des oxydes d'azote dans les flammes laminaires prémélangées

dirigés par Madame Pascale DESGROUX et Monsieur Laurent GASNOT

Soutenance prévue le **lundi 17 décembre 2018** à 14h00

Lieu : CERLA Université de Lille Avenue Paul Langevin Cité scientifique 59655 Villeneuve d'ascq Cedex
salle Amphi Pierre GLORIEUX

Composition du jury proposé

Mme Pascale DESGROUX	Université de Lille	Directeur de these
M. Laurent GASNOT	Université de Lille	CoDirecteur de these
M. Pierre Alexandre GLAUDE	Université de Lorraine	Rapporteur
Mme Véronique DIAS	Université Catholique Louvain (BE)	Rapporteur
Mme Zeynep SERINYEL	Université d'Orléans	Examineur
Mme Corine LACOUR	Université de Rouen	Examineur

Mots-clés : Combustion, furane- tetrahydrofurane, NO précoce, Flamme de pré-mélange, Fluorescence Induite
clés : par Laser, Chromatographie en Phase Gazeuse

Résumé :

La lutte contre le réchauffement climatique et la raréfaction des ressources pétrolières conduisent à un intérêt croissant pour les énergies renouvelables. Les composés furaniques, qui peuvent être produits à partir de biomasse lignocellulosique, présentent des propriétés de combustion comparables à celles des carburants commerciaux. L'utilisation de ces composés peut représenter une alternative aux combustibles fossiles. Il est cependant nécessaire d'évaluer leur effet sur la formation d'émissions polluantes. Très peu d'études ont considéré leur impact sur la formation des oxydes d'azote (NO_x), qui constituent une grande famille de polluants dans les procédés de combustion et jouent un rôle crucial dans la chimie de l'atmosphère. Ce travail de thèse porte sur le rôle de l'oxydation des biocarburants lignocellulosiques dans la cinétique de formation des oxydes d'azote. Les objectifs de ce travail de thèse sont (i) étudier la cinétique d'oxydation des éthers insaturés et saturés, furane et tétrahydrofurane (THF) afin de disposer d'une base de données expérimentales en condition de flamme laminaire de pré-mélange, (ii) tester des mécanismes cinétiques détaillés de l'oxydation de ces biocarburants disponibles dans la littérature sur la formation du NO précoce. Six flammes laminaires prémélangées à basse pression (5.3 kPa) ont été étudiées en conditions stœchiométriques et légèrement riches ($\phi = 1.2$). Les compositions de combustible considérées sont : (i) le méthane pur, qui est utilisé comme flammes de référence, (ii) un mélange furane (50%) / méthane (50%) pour étudier l'effet du furane, et (iii) un mélange tétrahydrofurane (50%) / méthane (50%) pour évaluer l'impact du THF. La structure de ces flammes a été caractérisée en établissant les profils de fraction

molaire des produits et espèces intermédiaires stables en fonction de la distance au brûleur, à l'aide de la chromatographie en phase gazeuse couplée à des détecteurs FID/TCD/MS. Les profils de fraction molaire du NO et du radical CH ont été détectés quantitativement par Fluorescence Induite par Laser (LIF). Les résultats expérimentaux montrent que la structure moléculaire différente de ces éthers cycliques produit des différences significatives dans la formation d'espèces intermédiaires et de polluants. L'oxydation du furane favorise la formation de CH et la formation de NO dans les conditions de richesse examinées par rapport aux flammes de méthane. En revanche, l'oxydation du tétrahydrofurane réduit la formation de CH et la formation de NO dans les mêmes conditions. Les profils expérimentaux ont été comparés aux profils simulés issus de deux modèles cinétiques détaillés, indiquant des variations notables d'un modèle à l'autre. L'approche préliminaire de modélisation indique que les mécanismes étudiés doivent d'abord être améliorés pour la formation de CH, pour être ensuite couplés avec le sous-mécanisme de formation du NO validé au laboratoire PC2A pour atteindre les objectifs de cette thèse.

Abstract:

The use of biofuels enables a reduction of the dependence to petroleum-based fuels and should limit the increase of total amount of greenhouse gases emitted in the atmosphere. Unsaturated and saturated cyclic ethers produced from lignocellulosic biomass, such as furan derivatives, or tetrahydrofuran (THF) derivatives, are attractive oxygenated fuels, due to their combustion properties comparable to those of commercial gasolines. The use of these compounds may represent a very interesting alternative to fossil fuels, though their impact on the emissions of pollutants needs further experimental and theoretical evaluations. Few studies have considered their effect on the formation of nitrogen oxides (NO_x), which is an important family of pollutants in combustion processes and play a crucial role in atmospheric chemistry. This work investigates the role of oxidation of lignocellulosic biofuels in the formation of nitrogen oxides (NO_x) in flames. The objectives of this thesis are (i) to study the oxidation of unsaturated and saturated ethers, furan and tetrahydrofuran (THF) in order to have an experimental database under premixed laminar flame conditions, (ii) to test detailed kinetic mechanisms available in literature of oxidation of these biofuels on the prompt-NO mechanism. Six premixed low-pressure laminar flames (5.3 kPa) were studied under stoichiometric and slightly rich conditions ($\phi = 1.2$). The considered fuel compositions are: (i) pure methane, which is used as a reference flame, (ii) a furan (50%) / methane (50%) mixture to study the effect of furan, and (iii) tetrahydrofuran (50%) / methane (50%) to evaluate the impact of THF. The structure of these flames was characterized by establishing the mole fraction profiles of stable intermediates and products as a function of the height above the burner (HAB), using gas chromatography coupled with FID / TCD/ MS detectors. The mole fraction profiles of NO and CH radical were quantitatively detected by Laser Induced Fluorescence (LIF). The experimental results show that the different molecular structure of these cyclic ethers leads to significant differences in the formation of intermediate species and pollutants. For CH and NO, results show that oxidation of furan promotes CH and NO formation with respect to methane flames, whereas oxidation of tetrahydrofuran reduces the formation of CH and NO in the same conditions. The experimental profiles were compared with the simulated profiles using two detailed kinetic models. Significant variations from one model to another are found. The preliminary modeling study indicates that the studied mechanisms require some improvements on the prediction of CH formation, before being coupled with the sub-mechanism of NO formation validated in the PC2A laboratory for fulfilling the aims of this thesis.